

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017 年 8 月 3 日(03.08.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/131222 A1

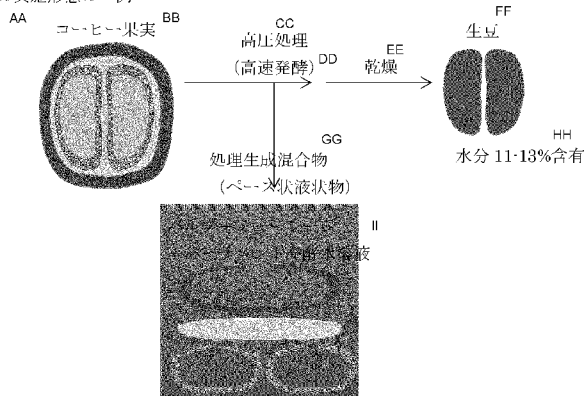
- (51) 国際特許分類:
A23F 5/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/003099
- (22) 国際出願日: 2017 年 1 月 30 日(30.01.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-014844 2016 年 1 月 28 日(28.01.2016) JP
- (71) 出願人: 国立大学法人東北大学(TOHOKU UNIVERSITY) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号 Miyagi (JP).
- (72) 発明者: 渡邊 賢(WATANABE Masaru); 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号 国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP). 猪股 宏(INO-MATA Hiroshi); 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号 国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP). スミス リチャード リー ジュニア(SMITH RICHARD LEE JR.); 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号 国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP). 佐々木 保正(SASAKI Yasumasa); 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号 国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP).
- (74) 代理人: 須田 篤, 外 (SUDA Atsushi et al.); 〒9800021 宮城県仙台市青葉区中央二丁目 1 番 3 0 号 須田ビル 5 F Miyagi (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロアジア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ユーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 規則 4.17 に規定する申立て:
— 発明者である旨の申立て (規則 4.17(iv))

[続葉有]

(54) Title: HIGH-PRESSURE TREATMENT METHOD FOR COFFEE BERRIES, METHOD FOR PRODUCING PRODUCT OF HIGH-PRESSURE TREATMENT OF COFFEE BERRIES, AND TREATED PRODUCT OBTAINED THEREFROM

(54) 発明の名称: コーヒー果実の高圧処理方法、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法及びその方法から得られた処理物

本発明の実施形態の一例



(57) Abstract: [Problem] To provide a method for quickly removing, fermenting, and separating the pericarp, the sarcocarp, and the like of coffee berries. [Solution] A method for producing a product of high-pressure treatment of coffee berries characterized by including a step in which, after a step in which coffee berries are subjected to high-pressure treatment at 10-1,000 MPa, the result is separated into a bean part and at least one other treated product of a part other than the bean part.

(57) 要約: 【課題】 コーヒー果実からすみやかに果皮や果肉等を剥離・発酵・分離する方法を提供する。 【解決手段】 コーヒー果実の高圧処理物の製造方法であって、コーヒー果実に10～1000 MPaの高圧処理を施す工程後、種子部と種子部以外の部の少なくとも1種の処理物に分離する工程を含むことを特徴とする、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

- AA One example of an embodiment of the present invention
BB Coffee berry
CC High-pressure treatment
DD High-speed fermentation
EE Drying
FF Raw bean
GG Mixture generated by treatment (paste-like liquid)
HH Water content of 11-13%
II Aqueous fermentation solution for pulp + mucilage + parchment



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

コーヒー果実の高圧処理方法、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法及びその方法から得られた処理物

技術分野

[0001] 本発明は、コーヒー果実の高圧処理方法、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法及びその方法から得られた処理物に関する。

背景技術

[0002] コーヒー果実は、外皮、果肉、ぬめりの有る内果皮（パーチメント）、銀皮（シルバースキン）、種子の構造になっている（図1）。種子の外側の部分を取り除いたものが生豆、さらに生豆を焙煎挽きしてコーヒー飲料として利用される。

コーヒー果実からコーヒー豆に精製するためには、コーヒー果実を収穫した後に速やかにパルプ等の果皮や果肉を除去機（パルパー）で剥離し、発酵工程を経て、水洗・乾燥して種子が取り出される工程を経ることが知られている。これが、（1）水洗式（ウォッシュト法）と呼ばれる精製方法である。

[0003] 一方、前記発酵工程を経ないでぬめりの付いたまま脱穀する（2）スマトラ式（ウェットハル法）や前記発酵工程を経ないでぬめりの付いたまま乾燥し脱穀する（3）ブラジル式（パルプトナチュラル法）、そして収穫したコーヒー果実をそのまま十分乾燥した後で脱穀するシンプルな（4）自然乾燥式（ナチュラル法）もあり、これら方法はコーヒー果実の生産地で古くから発展してきた。また精製方法や焙煎方法等の違いによって、風味の異なるコーヒーが愛用されている。

[0004] しかしながら、いずれの精製方式でも大きな問題点を有している。例えば（1）水洗式や（2）スマトラ式、（3）ブラジル式は、パルパー処理の際に大量の水を使用する為に果肉部から多くの水溶性成分が流出し、当該成分

を回収する場合には濃縮工程が必要となり、またその為には多くのエネルギーと時間を要する問題がある。(4) 自然乾燥式は、長時間の天日乾燥により抗酸化成分の多くが酸化反応により消失することや一部腐敗の危険性をはらむ等の問題を有する。また、(2) スマトラ式や(3) ブラジル式は、ぬめりの付いたまま乾燥する為に、(4) 自然乾燥式と同様な問題を有している。

[0005] このように、世界で広く採用されている上記(1)～(4)のコーヒー豆の精製は、生産地の熱帯地域において行われることが多く、雑菌による種子の腐敗の進行も心配され、収穫後は速やかに精製工程を実施する必要がある。

特許文献1には、収穫後のコーヒー果実の日持ちを良くする為のコーヒー果実の処理方法として、精製工程の前に、コーヒー果実を熱水で処理する方法が開示されている。

[0006] 一方、コーヒー果実には多くの有益な食品有効成分が含まれていることから、特許文献2には、コーヒー果実全体(種子部を含む)を急速乾燥して粉碎して水で有効成分を抽出、そしてSEC法(サイズ排除クロマトグラフィー法)で高分子～低分子の多糖類、ポリフェノール系のコーヒー酸、カフェイン等を分離する方法が開示されている。

[0007] また、特許文献3には、食用物質の抽出物を含む食用組成物であって、前記抽出物が、約0℃～約80℃の抽出温度及び少なくとも約2000バールの抽出圧力で水を含む抽出媒体中での食用物質の抽出から得られるものである前記組成物が開示されている。

[0008] さらに、特許文献4には、食用抽出生成物の製造方法であって、食用原材料を粒子へと粉碎すること、該食用原材料の粒子を水中で抽出して該食用原材料の抽出物を生成すること、該食用原材料の抽出物を少なくとも1つのフィルタを用いて、該食用原材料の抽出物中のクロロゲン酸の濃度が高まると同時に、該食用原材料の抽出物中の脂肪の濃度が低下するように濾過すること、そして得られた濾過保持液を該食用原材料の濾過された抽出物から分離

して、食用抽出生成物を形成することを含む前記製造方法が開示され、食用原材料の抽出物の濾過の前に、該食用原材料の抽出物に酵素を添加することで、炭水化物を凝集する酵素の使用が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：：国際公開WO 2006 / 126588号

特許文献2：：米国特許出願公開第2010 / 0080885号明細書

特許文献3：：国際公開WO 2013 / 103465号

特許文献4：：国際公開WO 2014 / 149512号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] しかしながら、コーヒー果実を収穫した後に腐敗を抑制しながら速やかにコーヒー生豆とするためには、パルプなどの果皮や果肉を速やかに剥離し発酵し又は乾燥させる必要があり、従来の上記（１）～（４）のコーヒー豆の精製では、パルプ部等に含まれている有効成分は利用されることなくパルパー除去され、またパルパー処理水内で腐敗（酸化分解）してしまい、利用できない課題があった。

本発明は、上記課題に鑑み、コーヒー果実を収穫した後に腐敗を抑制しながら速やかにコーヒー生豆とする利用だけでなく、パルプなどの果皮や果肉部から食品等に有効な成分を収得することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者等は、コーヒー果実に高圧処理を施すことで、パルプ部に含有する成分や種子部の腐敗・酸化分解を抑制できるコーヒー果実の高圧処理方法及び高圧処理物の製造方法を見出し、本発明に想到した。即ち、本発明は以下の手段を提供する。

[1] コーヒー果実の高圧処理物の製造方法であって、コーヒー果実に10～1000MPaの高圧処理を施す工程後、種子部と種子部以外の部の少なく

とも1種の処理物を分離する工程を含むことを特徴とする、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[2] 前記高圧処理を施す工程前に、コーヒー果実の質量に対して100質量倍以下の範囲で、0.001～10質量%の酵素を含む酵素添加水を投入する工程を含むことを特徴とする前項1に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[3] 高圧処理の温度が30～120℃の範囲であることを特徴とする前項1又は2に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[0012] [4] pH調整可能な化合物を添加することを特徴とする前項1乃至3の何れか1項に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[5] 前記コーヒー果実に10～1000MPaの高圧処理を施す工程が、コーヒー果実を高圧装置に投入する第1工程と前記高圧装置内の圧力を10～1000MPaの範囲で実施する第2工程からなることを特徴とする前項1乃至4の何れか1項に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[6] 前記第2工程の後で、処理物を前記高圧装置から取り出す第3工程を含む、前項5に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[0013] [7] 前記第1工程～前記第3工程を行った後、新たなコーヒー果実を第1工程に投入して第1工程～第3工程を順次繰り返す前項6に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[8] さらに、前記種子部を乾燥する工程又は前記種子部以外の部からコーヒー果実に含まれる成分を分離する工程を含むことを特徴とする、前項1乃至7の何れか1項に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。

[9] 前項1乃至8の何れか1項に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法から得られた処理物。

[0014] [10] コーヒー果実に10～1000MPaの高圧処理を施すことを特徴とするコーヒー果実の高圧処理方法。

[11] 前記高圧処理を施す前に、0.001～10質量%を含む酵素添加水を、コーヒー果実の質量に対して100質量倍以下の範囲で投入すること

を特徴とする前項 10 に記載のコーヒー果実の高圧処理方法。

[12] 温度が 30～120℃の範囲であることを特徴とする前項 10 又は 11 に記載のコーヒー果実の高圧処理方法。

[13] pH調整可能な化合物を添加することを特徴とする前項 10 乃至 12 の何れか 1 項に記載のコーヒー果実の高圧処理方法。

発明の効果

[0015] 本発明のコーヒー果実の高圧処理方法及び高圧処理物の製造方法によれば、コーヒー果実のパルパー粉碎処理やぬめり（シュミレージ）除去の為に発酵処理（通常 1 日～2 日間）、パーチメント（内果皮）の剥離処理を個別の工程として必要とせず、コーヒー果実の精製工程の大幅な時間短縮、生産コストの低減を図ることができる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]コーヒー果実の断面概略図を示す。

[図2]本発明の実施形態に係る、コーヒー果実の高圧処理の概略工程（一例）を示す。

[図3]従来技術（1）水洗式によるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。

[図4]従来技術（2）スマトラ式（ウェットハル法）によるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。

[図5]従来技術（3）ブラジル式（パルプトナチュラル法）によるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。

[図6]従来技術（4）自然乾燥式（ナチュラル法）によるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。

[図7]クロロゲン酸の代表的な化学構造を示す。

[図8]実施例で用いられたコーヒー果実（原料）の外観写真の一例である。

[図9]実施例で用いられたコーヒー果実（原料）のレトルト袋内に収納された状態の外観写真の一例である。

[図10]各実施例において、高圧処理後の液状化状況を見た外観写真である。

[図11]液状物のHPLC成分分析結果の一例である。

[図12]クロロゲン酸及びカフェイン酸の抽出量（回収）に対する圧力依存性を示す図の一例である。

[図13]クロロゲン酸及びカフェイン酸の抽出量（回収）に対する温度依存性を示す図の一例である。

発明を実施するための形態

[0017] 本発明は、前述の手段を提供するものであって、好ましくは、コーヒー果実の質量に対し100質量倍以下の範囲で、0.001～10質量%の酵素を含む水溶液をコーヒー果実に添加し10～1000MPaの高圧処理を施す工程と、その後、種子部と種子部以外の部の少なくとも1種の処理物を分離する工程とを有することを特徴とするコーヒー果実の高圧処理物の製造方法及び関連の従属発明を提供する。

以下、本発明の実施形態を詳細に説明する。

図1はコーヒー果実の断面図を示す。コーヒー果実は一般に赤く熟した果実（チェリー）を摘み取る。その果実の構成部は、外側から外皮1、その下部の果肉2、粘液質のペクチン質からなるミューレージ3、内果皮のパーチメント4、及び2つの種子5からなる。

[0018] 図2は、本発明の実施形態に係るコーヒー果実の高圧処理物の製造方法の概略（一例）を示す。図2では、集荷したコーヒー果実を高圧処理可能な装置内に入れ、高圧処理を施した後、液状物化（種子の周辺にゼリー状物が絡む）された処理物から種子とゼリー状物を分離する。

種子は水洗後に乾燥して生豆として回収、またゼリー状物にはパルプやミューレージ、パーチメント発酵物由来の液状物（水溶液）を分離する工程を表している。

ここで、液状物には、植物繊維質分解物や食品等に有効な成分の物質が含まれている。有益成分の物質の分離には、濾過法や圧縮脱水法、遠心分離法等の採用により、繊維質分解物を除去して、有効成分が溶解した水溶液部を収得することができる。さらにこの水溶液部は、サイズ排除クロマトグラフィー（SEC法、ゲルろ過クロマトグラフィー等）を用いて、有効成分の物

質に単離収得することができる。

[0019] 本発明の実施形態に係る発明は、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法であって、コーヒー果実に10～1000MPaの高圧処理を施す工程後、種子部と種子部以外の部の少なくとも1種の処理物を分離する工程を含む、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法を提供する。

ここで、高圧処理を施す圧力は、常温を超える圧力下であれば良く、著しい効果を発揮する為には圧力10～1000MPaの範囲が好ましく、さらに30～800MPaの範囲がより好ましく、50～600MPaの範囲が望ましい。高圧処理を施す圧力が10MPa未満の場合、本発明の効果を著しく低減してしまう恐れがある。また、処理圧力が1000MPaを超える場合は、高圧処理を施す容器や動力設備等の耐圧性に信頼性を損なう恐れが生じ、安全性の低下や運転時間が長くなる結果、生産コストに大きく影響する結果を招いてしまう恐れがある。また、酵素活性を低減してしまう恐れがある。

[0020] このように本発明において、コーヒー果実に高圧処理を施すことにより、コーヒー果実の腐敗や菌の働きを抑え、自己分解酵素を持っているコーヒー果実の酵素の作用を活性化させることができ、従来技術(1)～(4)に比べて、比べものにならない短時間で、かつ簡易な作業工程により、外皮や果肉、ミューレージ、パーチメント等を取り除くことが可能である。また、外部から積極的に酵素を補填することにより、前記の本発明の効果は加速される。

また、本発明の製造方法では、前記高圧処理を施す工程前に、コーヒー果実の質量に対して100質量倍以下の範囲で、0.001～10質量%の酵素を含む酵素添加水を投入する工程を含んでも良い。

[0021] 本発明の製造方法においては、通常生産地から運び込まれたコーヒー果実は選別も兼ねてタンク水等に投入され、ゴミ選別とコーヒー果実の洗浄の後に、高圧処理装置内に移され、水の無添加下又は所定量の水を投入して高圧処理が行われる。ここで、加水量は、好ましくは被処理物のコーヒー果実の

質量に対して、10倍量未満が良く、さらに5倍量未満がより好ましく、3倍量未満が望ましい。加水量が10倍量を超えると、高圧処理後に収得する液状物の溶液量が増えてしまう結果、その後の有効成分を含む水溶液の濃縮に多くのエネルギーと時間を要してしまい、有効成分の単離を困難にする恐れがある。

[0022] また、本発明では、好ましくは高圧処理を施す工程前に、酵素添加を行うのが良く、例えばコーヒー果実の乾燥固形質量に対して、酵素を0.01～5質量%の範囲で用いるのが良く、0.1～2質量%の範囲がさらに望ましい。酵素添加量が0.01未満であるとパルプ等の液状化の働きを最大限に発揮できない恐れがあり、また5質量%を超えて用いる場合には生産コストの大幅なアップになってしまう。酵素は、パーチメントに残った果肉の一部を除去するため水槽で発酵させる働きがあり、さらに高圧環境では発酵の反応が促進される。その結果、有益な発酵成分を多く産生することができる。

[0023] 高圧処理を施す際の処理温度は、通常30～120℃の範囲が好ましく、さらに30～100℃の範囲がより好ましく、30～80℃の範囲が望ましい。処理温度が30℃未満の低温では本発明の効果を著しく低減してしまう恐れがある。また処理温度が、120℃を超える場合は加熱～冷却等に係る時間が長くなる結果、生産コストに大きく影響する結果を招いてしまう恐れがある。

しかしながら、室温以上の高い温度域の処理では、コーヒー豆（種子部）に「煮詰め」の効果を付与することができ、その結果、本発明の高い温度での高圧処理を施す結果、場合によっては生豆の成分分解も併発し、糖質、アミノ酸類が増えるので、コーヒー豆の焙煎後の飲料としてコクや旨味成分の増大が期待される。

[0024] 本発明では、また好ましくは高圧処理を施す際に、pH調整剤を添加しても良い。pH調整剤としては、食品のpH調整に用いられているpH調整剤ならば広く用いることができる。例えばクエン酸、クエン酸三ナトリウム、炭酸ナトリウム、リン酸及びリン酸等を挙げることができる。

pH調整剤は、pH4～9の範囲で調整できるものが好ましい。

[0025] さらに、本発明のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法では、コーヒー果実に10～1000MPaの高圧処理を施す工程が、コーヒー果実を高圧装置に投入する第1工程と高圧装置内の圧力を10～1000MPaの範囲で実施する第2工程からなる。また、第2工程の後で、処理物を高圧装置から取り出す第3工程を含むでも良い。そして、第1工程～前記第3工程を行った後、新たなコーヒー果実を第1工程に投入して第1工程～第3工程を順次繰り返す、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法を提供する。

さらに、本発明では、種子部を乾燥する工程又は種子部以外の部からコーヒー果実に含まれる成分を分離する工程を含んでも良い。

[0026] また、本発明のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法から得られた処理物を提供する。

さらに、本発明では、コーヒー果実に10～1000MPaの高圧処理を施すことを特徴とするコーヒー果実の高圧処理方法を提供する。

[0027] 本発明では、コーヒー果実を高圧装置内に投入する際は、可撓性のある樹脂袋（例えばラミネート加工袋等）を使用して、所定の方法で脱気して密封、外気と遮断して高圧処理し、コーヒー果実の酸化を阻止することができる。ここで、高圧処理に利用できる高圧処理装置は、一般に密閉容器中で静水圧を利用する装置を採用することができる。例えば、公知な食品加工用で使用されている装置、CIP装置、パルス併用高圧処理装置、中低静水圧処理装置等の高静水圧装置が挙げられ、直接加圧方式（400MPa以上）や間接加圧方式（400MPa以下）が適する。

[0028] より具体的には、神戸製鋼所製CIP装置（型式CP900）、神戸製鋼所製パルス併用高圧処理装置、神戸製鋼所製WIP装置、神戸製鋼所製 超高压処理装置 Dr. CHEF、（株）スギノマシン製サーボプレッシャ500（HPV-50C20-S型）石川島播磨重工業（株）製の食品加工用装置、（株）山本水圧工業所製HYPREX TEST 1TA-90、NPSマシンリー（株）製高圧処理試験装置BP800、（株）東洋高圧製まるとエキス装置等のバッチ式装置が挙げられる。

[0029] また、連続的な高圧処理ができる装置としては、神戸製鋼所製の横型HPP超高圧処理装置（商品名“FOOD FRESHER”）やHiperbaric社製（120型等）装置なども適用される。

本発明で用いられる酵素には、酸化還元酵素、転移酵素、加水分解酵素、脱離酵素、異性化酵素、合成酵素から少なくとも1種を選択することができる。中でも加水分解酵素が好ましく使用される。加水分解酵素には、例えば、ホスファターゼ（ALPase）、アミラーゼ（でんぷん分解酵素）、ロイシンアミノペプチターゼ（LAP）、リパーゼ、トリプシン、キモトリプシン、プロテアーゼ（たんぱく質加水分解酵素）、ウロキナーゼ、ウレアーゼ、 β -ガラクトシダーゼ、グルコシダーゼ、リゾチーム、 β -ラクタマーゼ、アデノシン三リン酸加水分解酵素（ATPase）、アルギナーゼ、セルラーゼ、ヘミセルラーゼ、ペクチナーゼ、キシラナーゼ、インベルターゼ、ホスホリパーゼ、タンナーゼ、デキストラナーゼ等を挙げることができ、少なくとも1種を選択することができる。

さらには、システイン酵素、パイナップル酵素、パパイン酵素（精製パパイン）なども同様に挙げることができる。

[0030] 本発明では、さらに酵素を主剤に用いた酵素剤も用いることができる。この酵素剤として、例えば三菱フード（株）のコクラーゼP、 α -アミラーゼ、グルコアミラーゼ、ロテアーゼ「商品名コクラーゼ」、アミラーゼ「商品名コクラーゼG2」、セルラーゼ「商品名スクラーゼC」、キシラナーゼ（ヘミセルラーゼ）、「商品名スクラーゼX」、ペクチナーゼ「商品名スクラーゼN」、ペクチナーゼ「商品名スクラーゼS」、ペクチナーゼ、キシラナーゼ「商品名スクラーゼA」、インベルターゼ、パパイン「精製パパイン」、ホスホリパーゼ「ホスホリパーゼA1」、タンナーゼ、デキストラナーゼ「デキストラナーゼ2F」等を挙げることができ、少なくとも1種を選択することができる。さらにシステイン酵素やパイナップル酵素なども使用される。

[0031] 本発明では、好ましくはタンパク質分解酵素や植物繊維分解酵素（セルラーゼ、ペクチナーゼ等）からなる群から選ばれた少なくとも1種の酵素を用

いることが効果的である。さらにタンパク質分解酵素を単独又は他の酵素と共用して用いることも効果的である。

[0032] 特許文献4には、コーヒーの食用原材料から食用抽出生成物を製造する方法について、食用原材料を粒子に粉砕し、粒子を水中で抽出して抽出物を生成させ、フィルタを用いて濾過する前に、抽出物中の炭水化物を凝集させる為に酵素を添加する方法が開示されているが、本発明は、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法において、高圧処理を施す工程前に、所定濃度の酵素添加水を投入して所定の高圧処理を施すことにより、コーヒー果実からの液状化を促進して、種子部と種子部以外の部の少なくとも1種の処理物を分離する、コーヒー果実の高圧処理物の製造方法に関する。

[0033] また、本発明の実施形態に係る発明では、コーヒー果実に10～1000 MPaの高圧処理を施す工程が、コーヒー果実を高圧装置に投入する第1工程と高圧装置内の圧力を10～1000 MPaの範囲で実施する第2工程からなり、第2工程の後で、処理物を高圧装置から取り出す第3工程を含んでも良い。

[0034] その為、大量のコーヒー果実の高圧処理を行う際には、第1工程～第3工程を行った後、新たなコーヒー果実原料を第1工程に投入して第1工程～第3工程を流れ作業的に順次繰返して行うことができる高圧装置を用いることができる。このような高圧装置には、前記第1工程～前記第3工程を行った後、新たなコーヒー果実原料を第1工程に投入して第1工程～第3工程を順次流れ作業として行うことができる。

[0035] 図3は、従来技術(1)水洗式(ウォッシュト法)と呼ばれるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。この方式では、収穫したコーヒー果実はパルパー(果肉除去機)でその外皮と果肉を除去し、次いで発酵槽に移して1日～2日間、酵素の力でぬめりのあるミュージレージ(ペクチン質)を分解除去する。産地によっては、発酵槽を用いなくて、ミュージレージムーバーと呼ばれる機械でぬめりを強制的に除去することもある。発酵槽処理後は、ぬめりの取れたパーチメント(内果皮)付きコーヒー生豆を水洗する。水洗後

、含水率が11～12質量%程度になるまで乾燥し、脱穀機でパーチメントを取り除き、生豆を取り出す。

[0036] 図4は、従来技術(2)スマトラ式(ウェットハル法)によるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。この方式では、収穫したコーヒー果実はパルパーでその外皮と果肉を除去し、ぬめり(ミューシレージ)とパーチメント(内果皮)の付いたまま、水分40～50質量%程度まで乾燥する。その後、脱穀機でパーチメントを取り除き、生豆を取り出す。脱穀された生豆は、含水率が11～12質量%程度になるまで乾燥する。

[0037] 図5は、従来技術(3)ブラジル式(パルプトナチュラル法)によるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。この方式では、収穫したコーヒー果実はパルパーでその外皮と果肉を除去し、ぬめり(ミューシレージ)とパーチメント(内果皮)の付いたまま、カリカリの状態まで乾燥する。その後、脱穀機でミューシレージとパーチメントを取り除き、生豆を取り出す。

[0038] 図6は、従来技術(4)自然乾燥式(ナチュラル法)によるコーヒー豆の加工方式の概略工程を示す。この方式は、収穫したコーヒー果実を敷物の上に広げて長期間乾燥してカリカリの状態になったところで脱穀し生豆を取り出すシンプルな方法である。産地の自然環境等に対応して採用される。

[0039] このように、従来技術(1)～(4)は、加工プロセスに、パルパー(果肉除去機)工程、発酵工程(1日～2日程度)、乾燥工程(長期風乾)、水洗工程、脱穀工程等の多くの工程を必要とするが、産地の自然環境を活かしたプロセスと言える。

[0040] (有益成分の物質の単離)

前述のように、本発明のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法によって得られるゼリー状物(液状物)から、食品等に有効な成分を単離することができる。その代表的な成分の化合物誘導体としては、クロロゲン酸誘導体(chlorogenic acid、別名; カフェオイルキナ酸(caffeoylquinic acid)等のポリフェノール系化合物、高分子～低分子の多糖類、カフェイン、フラボノール等が挙げられる。特に最近では、ポリフェノール系化合物は、病気や老化

の原因となる活性酸素を減らす作用があることが知られている。図7は、このうちクロロゲン酸誘導体の代表的な成分の化学構造を示す。

[0041] 本発明では従来技術(1)～(4)に比べて、用いる水量を限定できるために、高圧処理後の有効成分を含む水溶液の濃縮に多くのエネルギーと時間を要することなく、有効成分の単離を容易にできる利点がある。

[0042] また、本発明のコーヒー果実の高圧処理を行った後、種子部と種子部以外の部の処理物に対して、CO₂超臨界処理をさらに加えることにより、当該種子部と種子部以外の部の処理物からCO₂流体に可溶な分解成分を取り除くことができ、前記有効成分の単離を容易にするだけでなく、コーヒー生豆(種子部)の焙煎後の飲料としてコクや旨味のバランスを改良することができる。

[0043] 以下、本発明を実施例によってさらに詳細に説明するが、本発明は実施例に限定されない。

実施例

[0044] 実施例1 (サンプル1)

コーヒー果実約20gを計量して、透明なラミネート加工袋(福助工業(株)製、Rタイプ)(本明細書ではラミネート加工袋と記載する)に入れ、所定の方法で吸引脱気しシーラーで密封、これを温度75℃、100MPa下の高圧処理装置内に設置して、24時間の高圧処理を実施した。コーヒー果実の入ったラミネート加工袋を高圧処理装置から取り出したところ、コーヒー果実の形状は保たれているものの液状物が浸み出していた。なお、図8は、実施例で用いたコーヒー果実(原料)の外観写真である。図9は、高圧処理を施す前のラミネート加工袋内に収納されたコーヒー果実(原料)の外観写真である。図10のサンプル1図は、実施例1の高圧処理を施した後の外観写真である(表1参照)。表1中、液状物の浸み出しをラミネート加工袋の外観から観測できたものを「○」、多くの液状物の観測できたものを「◎」、原形のままで液状物の浸み出しが見られないのを「×」と判定して記載した。

[0045] 実施例2 (サンプル2)

コーヒー果実と等量の水を密封した以外は、実施例 1 と同様に実施したところ、コーヒー果実の形状は保たれているものの液状物が浸み出していた（表 1 参照）。図 10 のサンプル 2 図は、実施例 2 の高圧処理を施した後の外観写真である。

[0046] 実施例 3（サンプル 3）

（株）超臨界技術研究所製「酵素D」（セルラーゼ+ペクチナーゼ、植物繊維分解酵素）を 0.01 g 添加した以外は、実施例 2 と同様に実施したところ、コーヒー果実の形状は大きく崩れ、コーヒー果実から多くの液状物が浸み出していた（表 1 参照）。図 10 のサンプル 3 図は、実施例 3 の高圧処理を施した後の外観写真である。

[0047] 実施例 4（サンプル 4）

（株）超臨界技術研究所製「酵素E」（プロテアーゼ、タンパク質分解酵素）を 0.01 g 添加した以外は、実施例 2 と同様に実施したところ、コーヒー果実の形状は大きく崩れ、コーヒー果実から多くの液状物が浸み出していた（表 1 参照）。図 10 のサンプル 4 図は、実施例 4 の高圧処理を施した後の外観写真である。

[0048] 実施例 5（サンプル 5）

三菱化学フード（株）製「酵素P」（パパイン酵素）を 0.01 g 添加した以外は、実施例 2 と同様に実施したところ、コーヒー果実の形状は大きく崩れ、コーヒー果実から多くの液状物が浸み出していた（表 1 参照）。図 10 のサンプル 5 図は、実施例 5 の高圧処理を施した後の外観写真である。

[0049] なお、酵素D（実施例 3）と酵素E（実施例 4）を比べると、酵素Dを加えた場合の方がコーヒー果実の形状の崩れが大きく、より多くの液状物が生成していた。一方、酵素P（実施例 5）を用いた場合は、多くの液状物の中に多くの生豆が抜け出していた。このように、複数の酵素を用いた場合には、酵素添加効果が顕現に現れた。

実施例 5 で高圧処理して得られたサンプル 5 から液状物とコーヒー豆を分離し、液状物を特許文献 2 の記述等を参照してその有効成分を分析したとこ

ろ、カフェイン、クロロゲン酸、カテキン、エピカテキンを検出した。これらの有効成分の収得率は、VDF FutureCeuticals社の公開情報 (<http://www.coffeeberry.com/chemistry-comparison-whole-coffee-green-coffee-bean>) のデータ値の理論値を参考にすると収率 20%～50%程度と推定された。

[0050] [表1]

表 1 高圧処理条件と外観判定

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5
加水	無し	当量	当量	当量	当量
酵素添加	無し	無し	酵素 D	酵素 E	酵素 P
外観判定	○	○	◎	◎	◎

[0051] 実施例 6

「酵素P」（パパイン酵素）を 0.01 g から 0.2 g に変更にした以外は、実施例 5 と同様に実施して、コーヒー果実から染み出た液状物の成分をHPLC（高速液体クロマトグラフィー）で分析したところ、図 11 に示すように、クロロゲン酸、カフェイン酸及びカフェインが検出された。なお、コーヒー果実から染み出た液状物は、所定の方法で液状物とコーヒー豆をフィルタ等を用いてろ過分離した。HPLC測定は、当業者が通常用いる方法、例えばODSカラム、カラムオーブン30℃、溶離液；1質量%ギ酸水溶液のアセトニトリル溶離液（アセトニトリル1部；当該水溶液9部）、流量1mL/分、検出器；紫外可視分光検出器UV-vis（325nm）で実施した。

[0052] 実施例 7

高圧処理の時間を 17 時間に変更し、「酵素P」（パパイン酵素）を 0.01 g から 0.2 g に変更した以外は、実施例 5 と同様に実施して、クロロゲン酸及びカフェイン酸の抽出（回収量）に対する圧力依存性を調べたところ、図 12 に示す結果を得た。なお、図 12 では比較として圧力をかけない時の成分回収量と対比した。成分の回収量は、高圧処理後の液状物を分離し所定の方法で pH を 4～5 に調整して、所定の方法で分析した。図 12 で明らかなように、100MPa の高圧下の方がクロロゲン酸（Chloro_A.）及びカフェイン酸（Caffe_A.）を多く抽出できることがわかった。

[0053] 実施例 8

処理温度の依存性を調べる為に、処理温度を 75℃と 65℃にし、酵素を「酵素P」（パパイン酵素）単独で、また酵素Pと「酵素D」（セルラーゼ系：セルラーゼ+ペクチナーゼ）を当量、及び酵素Pと「酵素E」（プロテアーゼ）を当量で用い、用いた酵素全量を 0.01g から 0.2g に変更した以外は、実施例 5 と同様に実施して、クロロゲン酸及びカフェイン酸の抽出（回収量）に対する処理温度依存性を調べたところ、図 13 に示す結果を得た。成分の回収量は、実施例 7 に準じて実施した。図 13 で明らかなように、75℃下での高圧処理の方が 65℃よりもクロロゲン酸（Chloro_A.）及びカフェイン酸（Caffe_A.）を多く抽出できることがわかった。

[0054] 比較例 1

コーヒー果実約 20g と水 20g（等量分）を計量して、透明なラミネート加工袋に入れ、所定の方法で吸引脱気しシーラーで密封、これを室温、大気圧下で 24 時間静して観察した。ラミネート加工袋中のコーヒー果実の外観には全く変化は見られなかった（表 2 参照）。なお、表 2 における外観判定は、表 1 と同じ判定とした。

[0055] 比較例 2

酵素Dを 0.01g 添加した以外は、比較例 1 と同様に実施したところ、ラミネート加工袋中のコーヒー果実の外観には全く変化は見られなかった（表 2 参照）

[0056] [表2]

表 2 高圧処理条件と外観判定

	比較例 1	比較例 2			
加水	無し	当量			
酵素添加	無し	有り			
外観判定	×	×			

[0057] このように、本発明のコーヒー果実の高圧処理方法から、従来にはないコーヒー豆（種子）やパルプ等由来からくる植物繊維分解物の有効成分が製造できる。食品等用の有効成分となる物質は、さらに牛、豚、鳥、魚等への飼

料添加用途や健康維持用サプリメント、健康飲料用途に幅広く利用される。

符号の説明

- [0058] 1 : 外皮
2 : 果肉
3 : ミューレージ（粘液質：ペクチン質）
4 : パーチメント（内果皮）
5 : 種子

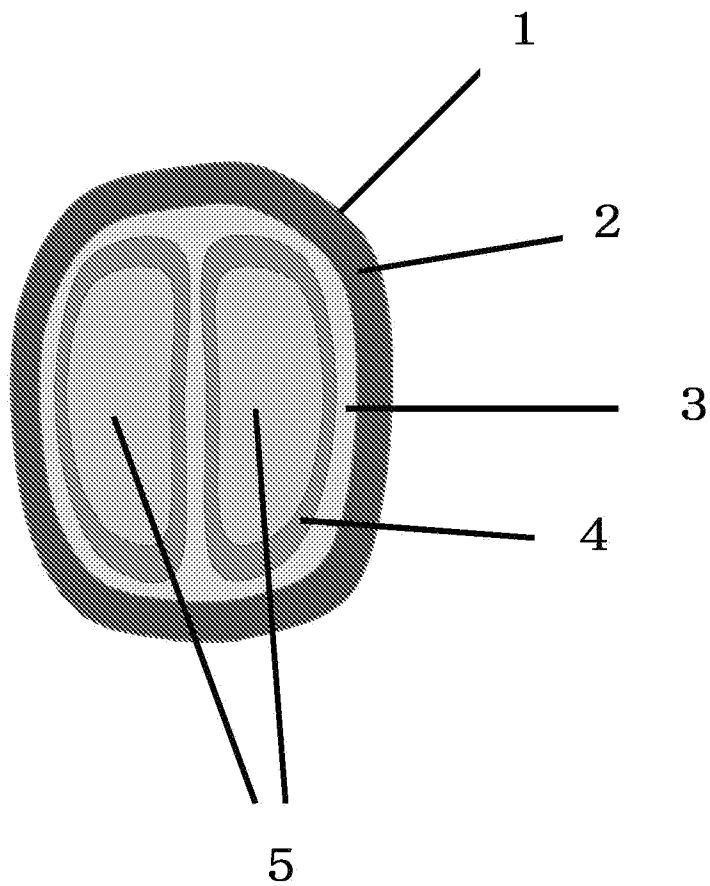
請求の範囲

- [請求項1] 前記コーヒー果実の質量に対し100質量倍以下の範囲で、0.001～10質量%の酵素を含む水溶液を前記コーヒー果実に添加し10～1000MPaの高圧処理を施す工程と、
その後、種子部と種子部以外の部の少なくとも1種の処理物を分離する工程とを
有することを特徴とするコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。
- [請求項2] 前記高圧処理の温度が30～120℃の範囲であることを特徴とする請求項1に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。
- [請求項3] 前記高圧処理を施す際に、pH調整可能な化合物を添加することを特徴とする請求項1又は2に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。
- [請求項4] 前記高圧処理を施す工程が、前記コーヒー果実と前記水溶液とを高圧装置に投入する第1工程と、前記高圧装置内の圧力を10～1000MPaの範囲にして前記高圧処理を実施する第2工程とを有することを特徴とする請求項1乃至3の何れか1項に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。
- [請求項5] 前記第2工程の後で、処理物を前記高圧装置から取り出す第3工程を含むことを特徴とする請求項4に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。
- [請求項6] 前記第1工程から前記第3工程を行った後、新たなコーヒー果実を前記高圧装置に投入して第1工程から第3工程を順次繰り返すことを特徴とする請求項5に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。
- [請求項7] 分離された前記種子部を乾燥する工程、又は、分離された前記種子部以外の部からコーヒー果実に含まれる成分を分離する工程を含むことを特徴とする請求項1乃至6の何れか1項に記載のコーヒー果実の高圧処理物の製造方法。
- [請求項8] 請求項1乃至7の何れか1項に記載のコーヒー果実の高圧処理物の

製造方法から得られることを特徴とする処理物。

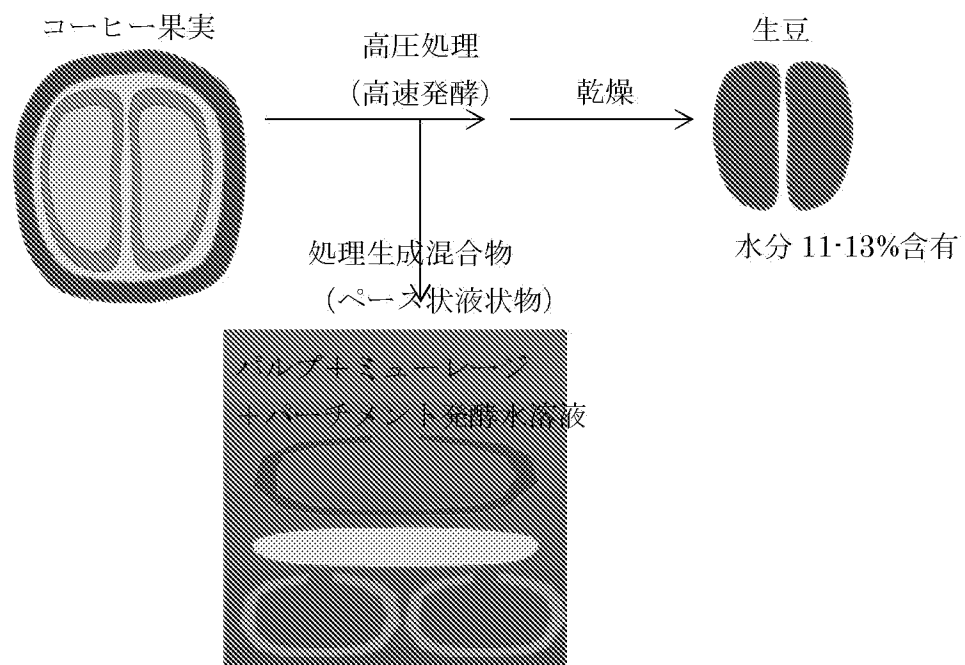
- [請求項9] コーヒー果実の質量に対し100質量倍以下の範囲で、0.001～10質量%の酵素を含む水溶液を前記コーヒー果実に添加し10～1000MPaの高圧処理を施すことを特徴とするコーヒー果実の高圧処理方法。
- [請求項10] 前記高圧処理時の温度が30～120℃の範囲であることを特徴とする請求項9に記載のコーヒー果実の高圧処理方法。
- [請求項11] 前記高圧処理を施す際に、pH調整可能な化合物を添加することを特徴とする請求項9又は10に記載のコーヒー果実の高圧処理方法。

[図1]



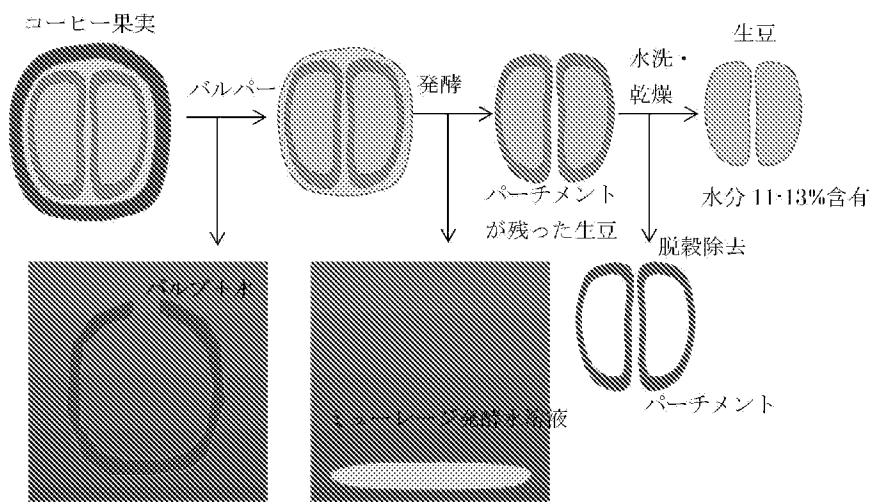
[図2]

本発明の実施形態の一例



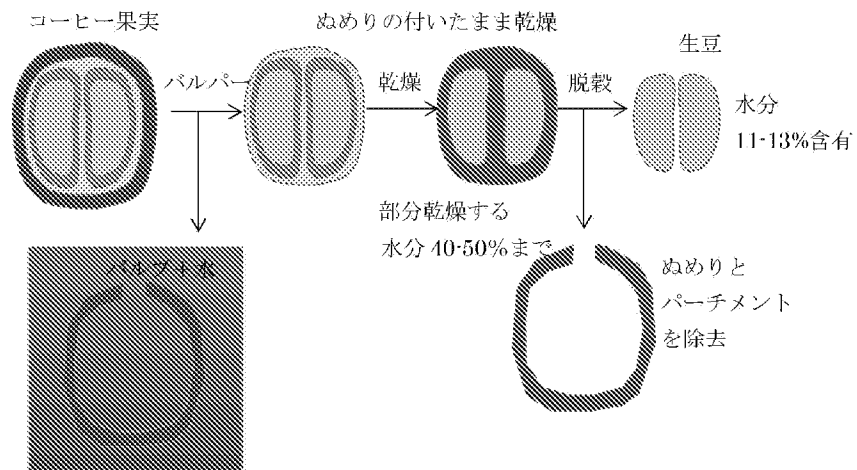
[図3]

従来技術（１）水洗式（ウォッシュト法）



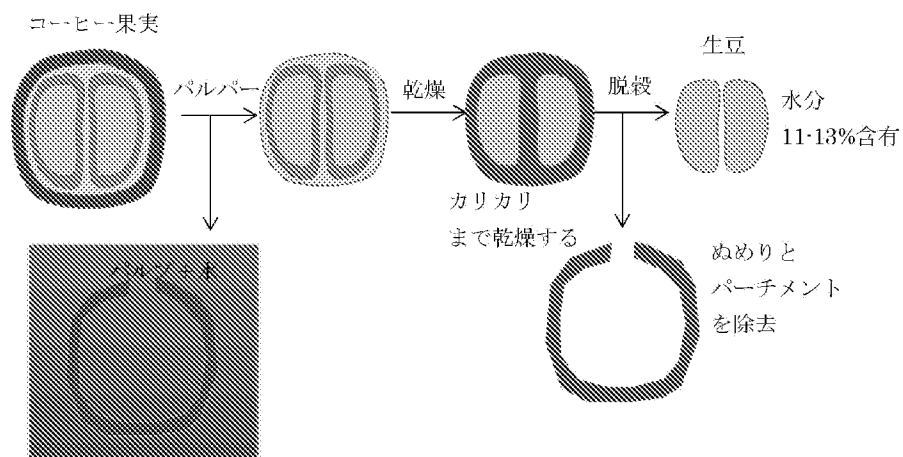
[図4]

従来技術（２）スマトラ式（ウェットハル法）



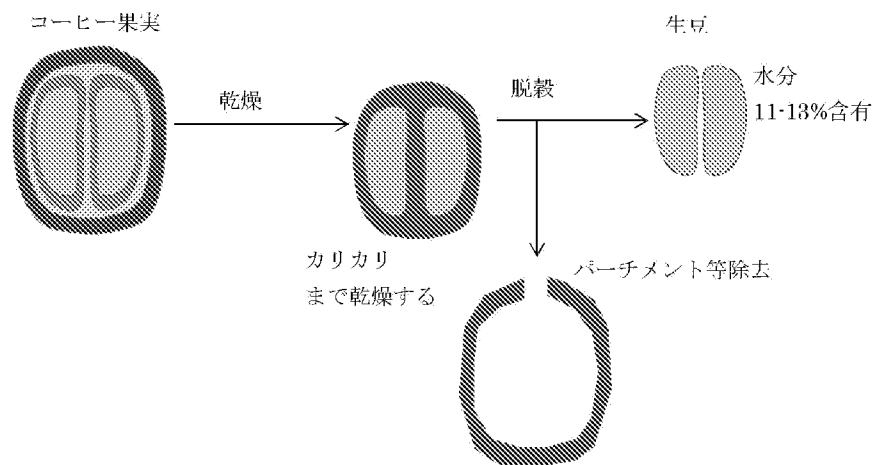
[図5]

従来技術（３）ブラジル式（パルプナチュラル法）



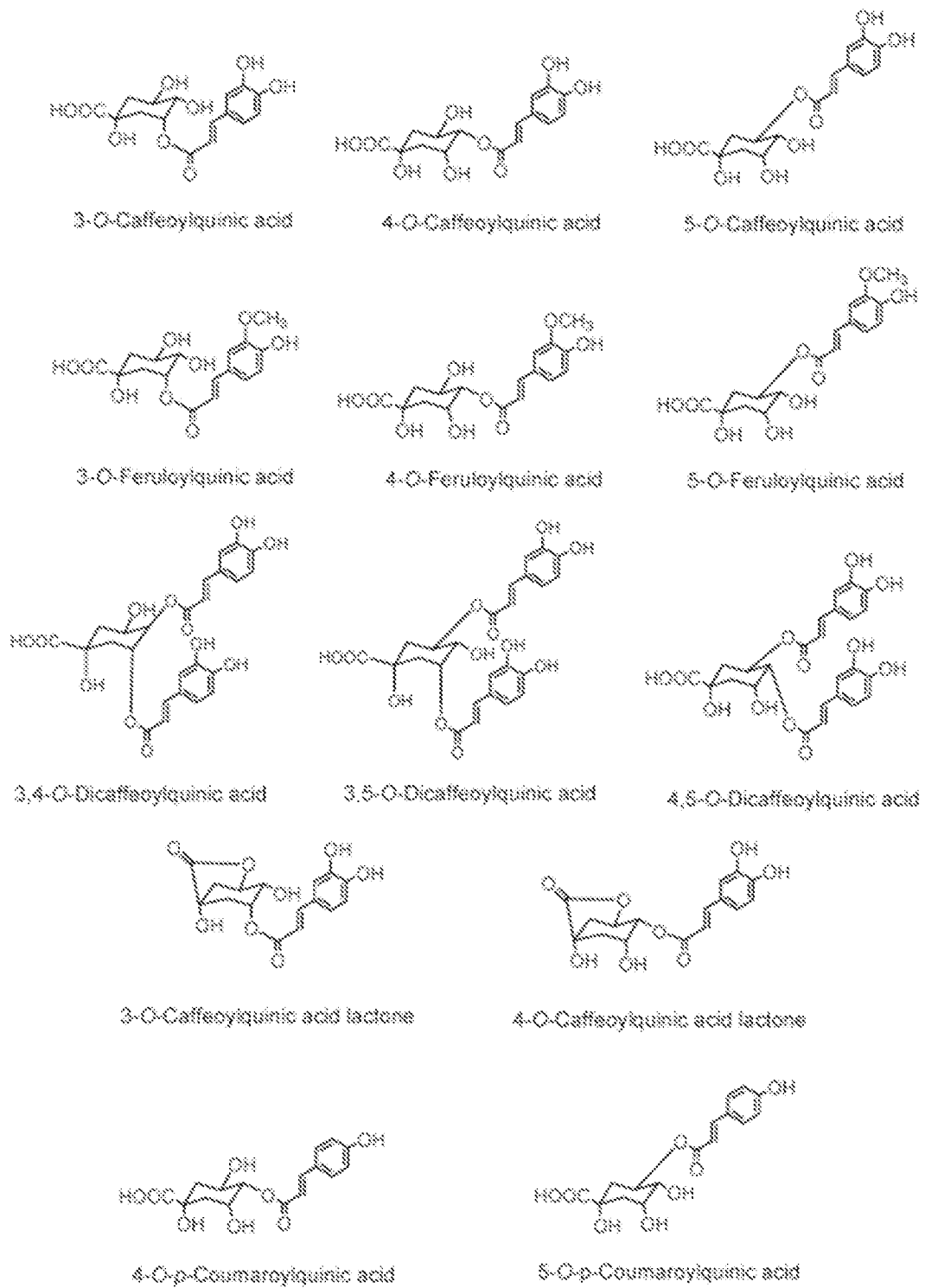
[図6]

従来技術（４）自然乾燥式（ナチュラル法）



[図7]

代表的なクロロゲン酸の化学構造



[図8]

コーヒー果実原料の外観写真図1



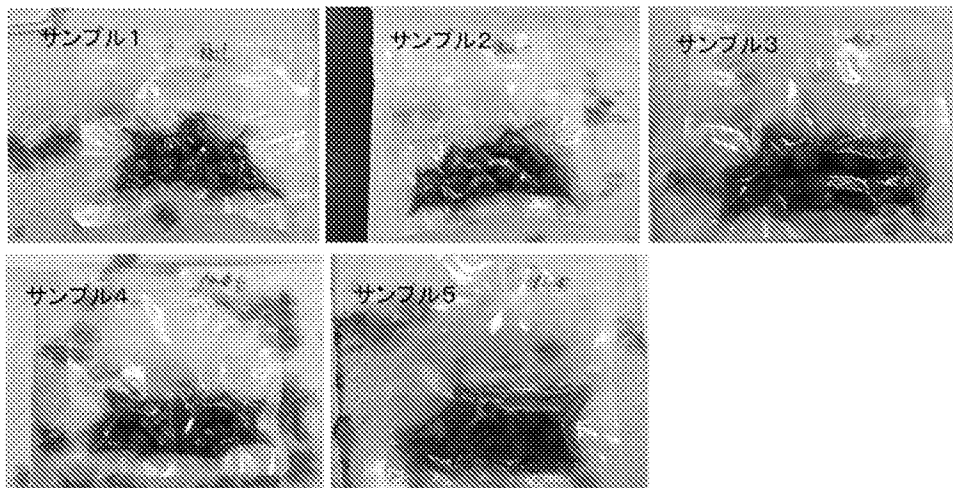
[図9]

透明なラミネート加工袋内に密封されたコーヒー果実原料の写真図2

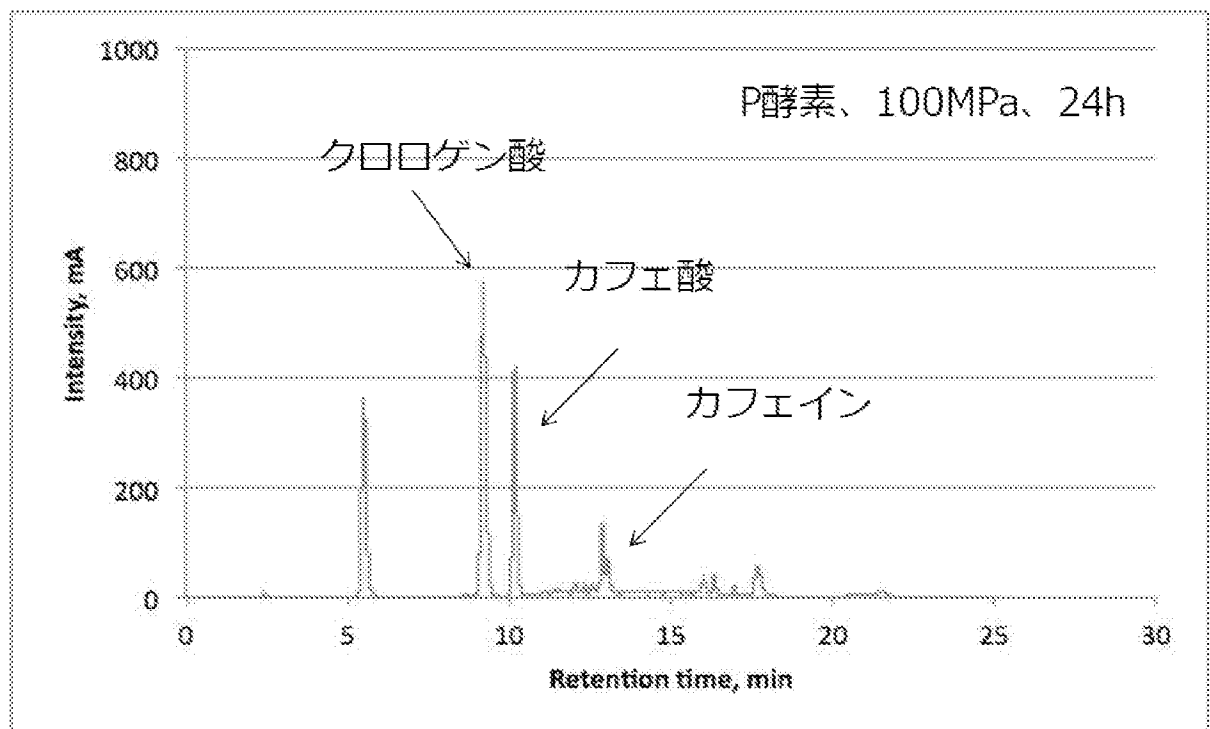


[図10]

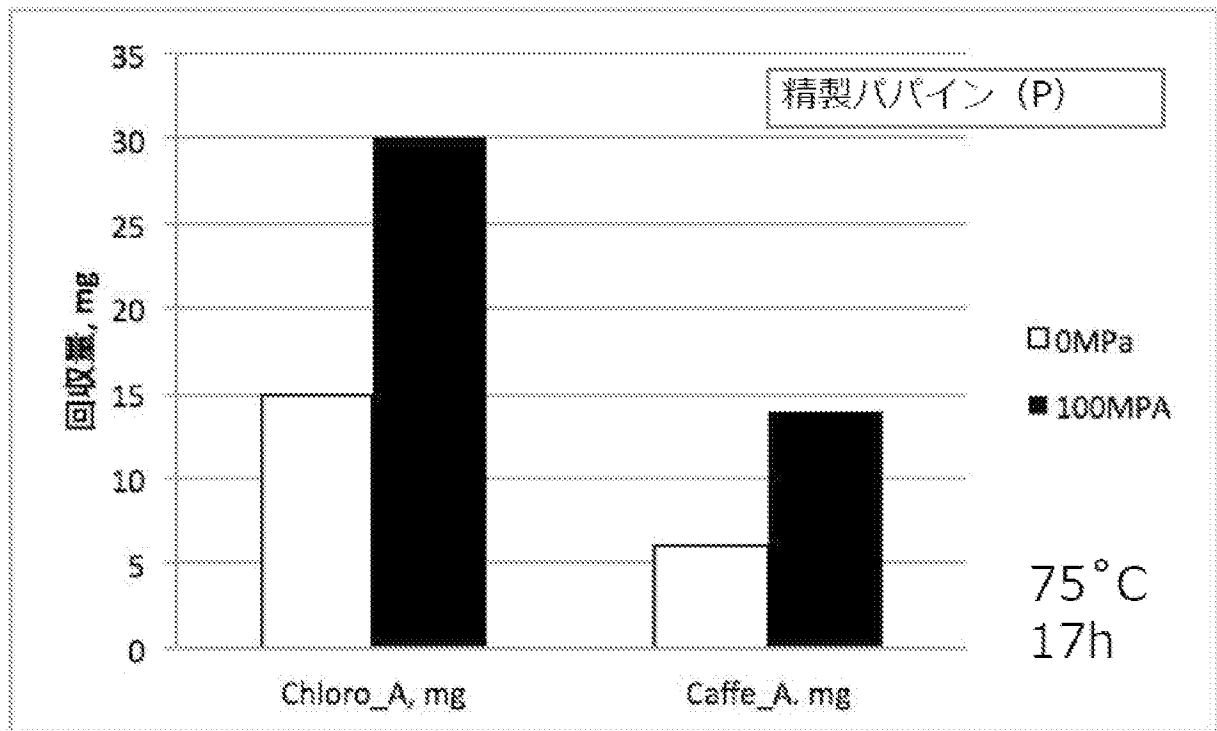
高压処理後の透明なラミネート加工袋内の様子を表す写真図3



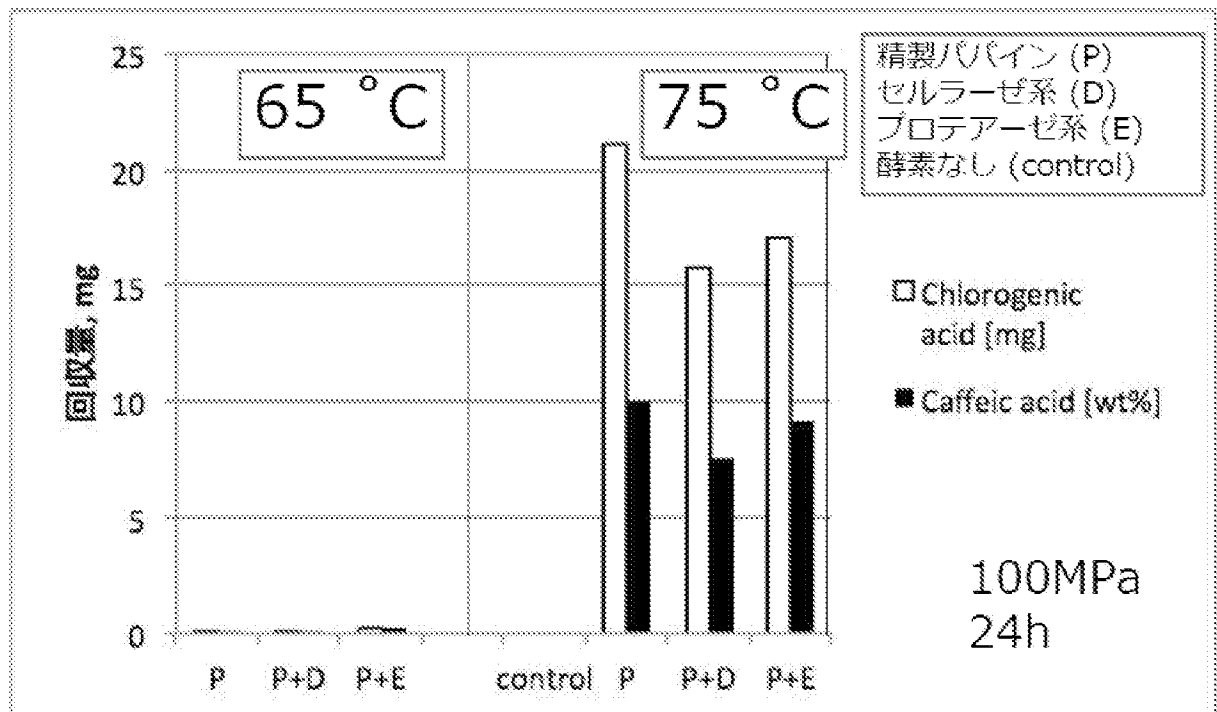
[図11]



[図12]



[図13]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/003099

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

A23F5/02 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

A23F5/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII), CAPLUS/MEDLINE/EMBASE/BIOSIS/AGRICOLA/BIOTECHNO/CABA/SCISEARCH(STN), Science Direct

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2011-103880 A (Amorepacific Corp.), 02 June 2011 (02.06.2011), claims; paragraphs [0001], [0015] & US 2011/0117220 A1 claims; paragraphs [0001], [0018] & KR 10-2011-0053051 A	1-11
Y	WO 2013/103465 A1 (STARBUCKS CORPORATION D/B/A/ STARBUCKS COFFEE CO.), 11 July 2013 (11.07.2013), paragraphs [0012], [0014]; claims & JP 2015-503355 A & EP 2800475 A1 & CN 104105410 A & KR 10-2014-0111304 A	1-11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 February 2017 (27.02.17)

Date of mailing of the international search report
07 March 2017 (07.03.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/003099

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2010/0080885 A1 (VDF FUTURECEUTICALS, INC.), 01 April 2010 (01.04.2010), claims; paragraphs [0003], [0004] & US 2006/0263508 A1 & US 2011/0014337 A1 & US 2010/0068318 A1 & US 2012/0014890 A1 & WO 2004/098320 A1	1-11
Y	WO 2014/149512 A1 (STARBUCKS CORPORATION D/B/A/ STARBUCKS COFFEE CO.), 25 September 2014 (25.09.2014), claims & JP 2016-510602 A & US 2014/0271988 A1 & US 2014/0272077 A1 & EP 2986133 A1 & CN 105050415 A & KR 10-2015-0131078 A	1-11
Y	W. Mullen, et al., The Antioxidant and Chlorogenic Acid Profiles of Whole Coffee Fruits Are Influenced by the Extraction Procedures, Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2011, Vol.59, pp.3754-3762 Abstract	1-11

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. A23F5/02 (2006.01) i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. A23F5/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII), Cplus/ MEDLINE/EMBASE/BIOSIS/AGRICOLA/BIOTECHNO/CABA/SCISEARCH (STN), Science Direct

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2011-103880 A (株式会社アモーレパシフィック) 2011.06.02, 特許請求の範囲, [0001], [0015] & US 2011/0117220 A1 (Claims, [0001], [0018]) & KR 10-2011-0053051 A	1-11

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27.02.2017

国際調査報告の発送日

07.03.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安居 拓哉

4 B

3437

電話番号 03-3581-1101 内線 3448

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2013/103465 A1 (STARBUCKS CORPORATION D/B/A/ STARBUCKS COFFEE COMPANY) 2013. 07. 11, [0012], [0014], Claims & JP 2015-503355 A & EP 2800475 A1 & CN 104105410 A & KR 10-2014-0111304 A	1-11
Y	US 2010/0080885 A1 (VDF FUTURECEUTICALS, INC) 2010. 04. 01, Claims, [0003], [0004] & US 2006/0263508 A1 & US 2011/0014337 A1 & US 2010/0068318 A1 & US 2012/0014890 A1 & WO 2004/098320 A1	1-11
Y	WO 2014/149512 A1 (STARBUCKS CORPORATION D/B/A STARBUCKS COFFEE COMPANY) 2014. 09. 25, Claims & JP 2016-510602 A & US 2014/0271988 A1 & US 2014/0272077 A1 & EP 2986133 A1 & CN 105050415 A & KR 10-2015-0131078 A	1-11
Y	W. Mullen, et al., The Antioxidant and Chlorogenic Acid Profiles of Whole Coffee Fruits Are Influenced by the Extraction Procedures, Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2011, Vol. 59, pp. 3754-3762 Abstract	1-11